BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

PRIORITY POCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)





Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen:

10 2004 007 456.9

Anmeldetag:

13. Februar 2004

Anmelder/Inhaber:

Degussa AG, 40474 Düsseldorf/DE

Bezeichnung:

Hochgefüllte Polyolefin-Compounds

IPC:

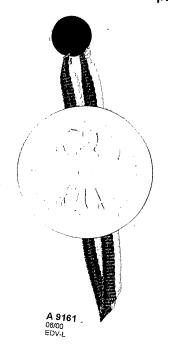
C 08 L, C 08 J

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 21. Mai 2004 **Deutsches Patent- und Markenamt Der Präsident** Im Auftrag

CEX

Ebert



10

25

30

Hochgefüllte Polyolefin-Compounds

Die vorliegende Erfindung betrifft hochgefüllte Polyolefin-Compounds, deren Herstellung sowie deren Verwendung, wobei die Polyolefin-Matrix der Compounds auf Polyethylen (PE), Polypropylen (PP), Ethylen/Propylen-Kautschuk (EPM), Ethylen/Propylen-Dien-Terpolymere (EPDM), deren Copolymere oder auf Mischungen zuvor genannter Polyolefine basiert.

Es ist bekannt, Füllstoffe in Polymere einzuarbeiten. Beweggründe hierfür sind die verstärkende, flammschützende sowie verstreckende Wirkungsweise dieser Füllstoffe auf das gefüllte Compound und das Endprodukt, z. B. Kabelisolierung. Ein weiterer Grund ist die gezielte Modifizierung von mechanischen Eigenschaften des Polymers.

15 Seit langem werden Aminosilane, wie z. B. DYNASYLAN® AMEO, eingesetzt, um trotz hoher Füllgrade mechanische Eigenschaften auf sehr hohem Niveau zu ermöglichen (US 3 843 591, EP 0 136 540 B1).

EP 0 518 057 B1 offenbart Gemische vinyl-/alkyl-/alkoxygruppenhaltiger Siloxane, 20 die als Vernetzungsmittel für thermoplastische Polyolefine verwendet werden.

Gemische aminopropyl-/alkoxy-/alkylfunktioneller Siloxan-Oligomerer gehen aus EP 0 997 469 A2 hervor, wobei die Gemische unter anderem als Haftvermittler in gefüllten thermoplastischen Compounds, bei der Beschichtung von Glasfasern sowie für die Silanisierung von Füllstoffen und Pigmenten Anwendung finden .

EP 0 953 591 B1 betrifft stabile Zusammensetzungen wasserlöslicher amino- und alkenylfunktioneller Organosiloxane, deren Herstellung und Verwendung zur Modifizierung der Eigenschaften von Pigmenten und Füllstoffen, wie Aluminiumoxid, Magnesiumoxid, Kieselsäure, Kreide, Gips, Schwerspat, Glasfasern, Glasperlen, Ruß, Wollastonit, Kaolin, Glimmer, Talkum - um nur einige zu nennen.

10

15

25

30

Aus EP 1 063 655 A1 geht die Verwendung funktioneller Organylorganyloxysilane oder von deren Cokondensaten auf Trägerstoffen in Kabelcompounds hervor.

Eine wesentliche Anforderung innerhalb der ISO 6722 ist die Alterungsuntersuchung von Automobilkabeln über einen Zeitraum von 3.000 Stunden bei 125 °C (Temperature Class C). Gegenwärtig werden verschiedene technische Systeme diesen Ansprüchen gerecht. Als Alternative zu gefüllten und vernetzten Isoliermantelmischungen werden auch thermoplastische und gefüllte Compounds auf Basis von Polypropylen (PP) sowie Polyethylen (PE) eingesetzt. Um eine gute Haftvermittlung zwischen flammhemmendem Füllstoff und unpolarem Polymer zu gewährleisten, wird dem Polymer ein polarer Haftvermittler zugegeben. In der Regel führt der Einsatz von mit Maleinsäureanhydrid (MAH) modifiziertem Polyolefin als Kompatibilisierungsagens zwischen unpolarer Polymermatrix und dem polareren mechanischen Füllstoff neben Verarbeitungsvorteilen auch zu besseren Eigenschaften der Compounds und damit der Kabelmaterialien. Dazu müssen üblicherweise bis rund 15 % des Polymeranteils im Compound als MAH-gepfropftes Polyolefin eingesetzt werden.

Der Erfindung lag nun die Aufgabe zugrunde, weitere hochgefüllte Polyolefin-20 Compounds bereitzustellen.

Die gestellte Aufgabe wird erfindungsgemäß entsprechend den Angaben der Patentansprüche gelöst.

Überraschenderweise wurde nun gefunden, dass durch den zusätzlichen Einsatz mindestens eines aminofunktionellen Silansystems bei der Herstellung eines hochgefüllten Polyolefin-Compounds, insbesondere solcher auf Basis von PE, PP, EPM sowie EPDM, der Anteile an maleinsäureanhydridmodifiziertem, d. h. MAHgepfropftem Polymer enthält, die Schmelzeviskosität der Massen signifikant reduziert werden kann, was auf eine erheblich bessere Dispergierung des Füllstoffs in der Neben der daraus resultierenden geringeren Polymermatrix hinweist. Maschinenbelastung und qualitativ hochwertigen Extrudatoberflächen ergaben sich erhaltenen zudem noch verbesserte mechanische Eigenschaften der so

hochgefüllten Compounds. Besonders hervorzuheben ist in diesem Zusammenhang auch die signifikant erhöhte Bruchdehnung so erhaltener Compounds. Durch den Einsatz aminofunktioneller Siliciumverbindungen bei der Herstellung besagter Polyolefin-Compounds konnte darüber hinaus eine erhöhte Hydrophobie in der Formmasse erzielt werden, was zu einer wesentlich niedrigeren Wasseraufnahme und somit zu verbesserten elektrischen Eigenschaften in den Endprodukten führt. Ferner wurde gefunden, dass durch den Einsatz aminofunktioneller Siliciumverbindungen in einfacher und wirtschaftlicher Weise der Anteil an MAHgepfropften Polyolefin-Anteilen im Compound reduziert werden kann.

10

5

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind daher hochgefüllte Polyolefin-Compounds, bei deren Herstellung maleinsäureanhydridmodifiziertes Polyolefin und mindestens eine aminofunktionelle Siliciumverbindung in Kombination eingesetzt werden.

15

Bevorzugt basiert die Herstellung erfindungsgemäßer Polyolefin-Compounds auf Einsatzstoffe aus der Reihe

- (i) Polypropylen (PP) oder Polyethylen (PE),
- (ii) maleinsäureanhydridmodifiziertes Polypropylen oder maleinsäureanhydridmodifiziertes Polyethylen,
- (iii) anorganischer oder organischer Füllstoff und
- (iv) mindestens einem Aminosilan und/oder Aminosiloxan sowie
- (v) gegebenenfalls Stabilisatoren bezüglich thermischer Belastung, Metallionen und UV-Belastung sowie Prozesshilfsmittel, wie Silikonöle, Paraffine, Fettsäuren um nur einige Beispiele zu nennen.

25

20

In der Regel basieren erfindungsgemäße Compounds auf handelsüblichen Polyolefin-Typen als Komponente (i), insbesondere PE sowie PP.

30 Komponente (ii) beruht bevorzugt auf PP- und PE-Typen, die speziell mit Maleinsäureanhydrid gepfropft sind. Auch dieses Material ist im Handel erhältlich.

Erfindungsgemäße Compounds weisen bevorzugt einen Anteil von 0,1 bis 15 Gewichtsteilen der Komponente (ii) am Gesamtpolymeranteil auf. Besonders bevorzugt man in den erfindungsgemäßen Compounds einen Anteil an Komponente (ii) von 0,5 bis 12 Gewichtsteilen, ganz besonders bevorzugt von 0,8 bis 10 Gewichtsteilen, insbesondere von 1 bis 6 Gewichtsteilen, von 100 Gewichtsteilen Gesamtpolymeranteilen.

Als Komponente (iii), d. h. Füllstoff enthalten erfindungsgemäße Compounds -hydroxide, wie Magnesiumhydroxid, bevorzugt Metalle, Metalloxide bzw. Aluminiumhydroxid, Antimonoxid, Siliciumoxide in allen Formen und Modifikationen, beispielsweise Siliciumdioxid, Silikate, Organoclays, ferner Calciumcarbonat, aber Holz, Naturfasern, bioabbaubare Füllstoffe. auch Naturstoffe. wie Kombinationen der zuvor genannten Füllstoffe, wobei die Füllstoffe geeigneterweise in Pulverform bis hin zu Nanoteilchen eingesetzt werden.

15

10

5

Dabei weisen erfindungsgemäße Compounds als hochgefüllte Systeme vorteilhaft einen Gehalt an Füllstoff von 30 bis 85 Gew.-%, bevorzugt 40 bis 80 Gew.-%, besonders bevorzugt 50 bis 75 Gew.-%, insbesondere 55 bis 70 Gew.-%, bezogen auf den Compound, auf.

20

Darüber hinaus basieren die erfindungsgemäßen, hochgefüllten Polyolefin-Compounds bevorzugt auf den Einsatz von mindestens einer aminofunktionellen Siliciumverbindung aus der Reihe

25 a) Aminosilan der allgemeinen Formel I

$$R^1$$
-Si(CH₃)_x(Z)_{3-x} (I),

30

worin die Gruppen Z gleich oder verschieden sind und Z eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 C-Atomen bedeutet, x gleich 0 oder 1 ist und R^1 eine Aminogruppe der Formel $H_2N-[(CH_2)_2NH]_y-(CH_2)_3-$ mit y gleich 0 oder 1 oder 2 darstellt,

b) Aminosilan der allgemeinen Formel II

$$R^{2}_{(2-y)}NH_{y}-(CH_{2})_{3}-Si(CH_{3})_{x}(Z)_{3-x}$$
 (II),

5

worin die Gruppen Z gleich oder verschieden sind und Z eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 C-Atomen bedeutet, x und v unabhängig gleich 0 oder 1 sind, Gruppen R² gleich oder verschieden sind und R² eine lineare, cyclische oder verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 20 C-Atomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 12 C-Atomen darstellt,

10

c) Bis-Aminosilan der allgemeinen Formel III

$$(Z)_3Si(CH_2)_3[NH(CH_2)_2]_wNH[(CH_2)_2NH]_z(CH_2)_3Si(Z)_3$$
 (III),

15

worin die Gruppen Z gleich oder verschieden sind und Z eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 C-Atomen darstellt, w und z unabhängig von einander gleich 0, 1 oder 2 sind,

d) Aminosiloxan-Oligomere der allgemeinen Formeln (IV) und (V),

20

in denen die Substituenten R aus

25

- aminopropylfunktionellen Gruppen der Formel -(CH₂)₃-NH₂ oder
 -(CH₂)₃-NHR' oder -(CH₂)₃-NH(CH₂)₂-NH₂ oder
 -(CH₂)₃-NH(CH₂)₂-NH(CH₂)₂-NH₂, worin R' eine lineare, verzweigte oder cyclische Alkylgruppe mit 1 bis 18 C-Atomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 12 C-Atomen ist, und
- Methoxy-, Ethoxy- und/oder Propoxygruppen und

10

15

20

25

- gegebenenfalls Alkyl-, Alkenyl-, Isoalkyl-, Cycloalkylgruppen mit 1 bis 18 C-Atomen und/oder Arylgruppen mit 6 bis 12 C-Atomen bestehen, wobei an ein Siliciumatom höchstens eine aminopropylfunktionelle Gruppe gebunden ist und der Oligomerisierungsgrad für Verbindungen der allgemeinen Formel IV im Bereich von $2 \le m \le 30$ und der für Verbindungen der allgemeinen Formel V von $3 \le n \le 16$ und der Quotient aus dem molaren Verhältnis Si/Alkoxy-Gruppierung bevorzugt $\ge 0,5$ ist, welche in der Regel durch Hydrolyse, Kondensation oder Cokondensation von primären und/oder sekundären Aminosilanen sowie gegebenenfalls entsprechender, organofunktioneller, hydrolysierbarer Silane erhältlich sind und neben linearen oder cyclischen Strukturen auch als Raumstruktur vorliegen können,

e) einer Mischung aus mindestens zwei der zuvor genannten aminofunktionellen Siliciumverbindungen,

oder

f) einer Mischung mindestens einer aminofunktionellen Siliciumverbindung und mindestens einem Vinylsilan und /oder Alkylsilan. Dabei sind als Vinylsilane bzw. Alkylsilane insbesondere Vinyltrimethoxysilan, Vinyltriethoxysilan, Methyltrimethoxysilan, Methyltriethoxysilan, Vinyl-tris(2-methoxyethoxy)silan, i-sowie n-Propyltrimethoxysilan, i-sowie n-Propyltriethoxysilan, i-sowie n-Butyltriethoxysilan, i-sowie n-Octyltriethoxysilan, Hexadecyltrimethoxysilan sowie Octadecyltrimethoxysilan geeignet.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ferner ein Verfahren zur Herstellung erfindungsgemäßer hochgefüllter Polyolefin-Compounds, das dadurch gekennzeichnet ist, dass man

(A) die Komponenten (i), (ii), (iii), (iv) und gegebenenfalls (v) in einem beheizten Mischaggregat mit Extrusionsvorrichtung zusammenbringt, mischt, die flüssige Masse extrudiert und Granulat gewinnt oder

10

15

20

25

30

(B) in einem gegebenenfalls beheizbaren Rührkessel zunächst die Komponente (iii) mit Komponente (iv) mischt bzw. beschichtet, wie es beispielsweise aus EP 0 955 344 A2 zu entnehmen ist,

ferner die Komponenten (i) und (ii) sowie gegebenenfalls (v) in einem beheizten Mischaggregat mit Extrusionsvorrichtung zusammenbringt, mischt und danach das im Reaktor erzeugte Gemisch der Komponenten (iii) und (iv) dem Polymergemisch zusetzt und einarbeitet, die flüssige Masse extrudiert und das Granulat gewinnt.

Beispielsweise – aber nicht ausschließlich – kann man bei der vorliegenden Erfindung als Komponente (i) bevorzugt PP oder PE, beispielsweise Hifax CA 10A, verwenden.

Als Komponente (ii) bevorzugt man in der Regel entsprechende MAH-gepfropfte Polyolefine, beispielsweise Exxelor PO 1020.

Beim erfindungsgemäßen Verfahren verwendet man als Komponente (iii) bevorzugt einen Füllstoff aus der Reihe Magnesiumhydroxid, beispielsweise Magnifin H7, Aluminiumhydroxid, Siliciumdioxid, Antimonoxid, Calciumcarbonat – um nur einige Möglichkeiten zu nennen.

Weiterhin setzt man beim erfindungsgemäßen Verfahren vorteilhaft 0,01 bis 5 Gew.-%, bevorzugt 0,05 bis 3 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,1 bis 2 Gew.-%, insbesondere 0,5 bis 1,5 Gew.-%, der Komponente (iv), bezogen auf den Compound, ein.

Insbesondere bevorzugt man beim erfindungsgemäßen Verfahren als Komponente (iv) den Einsatz einer aminofunktionellen Siliciumverbindung aus der Reihe 3-Aminopropyltrimethoxysilan (AMMO): $[H_2N(CH_2)_3Si(OCH_3)_3]$, 3-Aminopropyltrimethoxysilan (AMEO): $[H_2N(CH_2)_3Si(OC_2H_5)_3]$, N-Aminoethyl-3-aminopropyltrimethoxysilan (DAMO): $[H_2N(CH_2)_2NH(CH_2)_3Si(OCH_3)_3]$, N-Aminoethyl-N'-aminoethyl-3-aminopropyltrimethoxysilan (TRIAMO): $[H_2N(CH_2)_2NH(CH_2)_2NH(CH_2)_3Si(OCH_3)_3]$, 3-[N-Butylamino]propyltrimethoxysilan, 3-[N-Butylamino]propyltrimethoxysilan, oder ein sogenanntes "Bis-Aminosilan", wie

"Bis-AMEO": $[(H_5C_2O)_3Si(CH_2)_3NH(CH_2)_3Si(OC_2H_5)_3]$ oder "Bis-AMMO": $[(H_3CO)_3Si(CH_2)_3NH(CH_2)_3Si(OCH_3)_3]$.

Bis-Aminosilane im Sinne der vorliegenden Erfindung sind auch solche, wie sie aus EP 1 031 593 B1 zu entnehmen sind. Ferner ist hieraus auch eine Methode zur Hydrolyse, Kondensation bzw. Cokondensation von primären und sekundären Aminosilanen zu entnehmen. Aus EP 1 031 593 B1 gehen auch Beispiele für Aminosiloxane hervor.

Es wird ausdrücklich darauf hingewiesen, dass der gesamte Inhalt der zuvor oder der nachfolgend aufgeführten Zitatstellen gleichzeitig als Offenbarung der vorliegenden Anmeldung zu sehen sind.

Beispiele für weitere Siloxane im Sinne der vorliegenden Erfindung, welche im Allgemeinen durch Hydrolyse, Kondensation oder Cokondensation entsprechender Aminosilan- bzw. Organosilan-Verbindungen erhältlich sind, einschließlich Methoden zur Herstellung entsprechender Siloxane können insbesondere den europäischen Schutzrechten EP 0 716 127 A2, EP 0 716 128 A2, EP 0 832 911 A1, EP 0 953 591 B1 sowie EP 0 997 469 A2 entnommen werden.

20

15

5

Beim erfindungsgemäßen Verfahren kann man aber auch Mischungen aus besagten aminofunktionellen Siliciumverbindungen einsetzen. Mischungen aus den genannten Aminosilanen und/oder Aminosiloxanen kann man im Allgemeinen durch jeweiliges Zusammengeben der Einzelkomponenten unter guter Durchmischung herstellen.

25

Beim erfindungsgemäßen Einsatz von wässrigen Aminosilan- bzw. Aminosiloxansystemen als Komponente (iv) verfährt man bevorzugt nach der Verfahrensvariante (B).

30 Beim Einsatz von nicht wässrigen Aminosilan- bzw. Aminosiloxansystemen als Komponente (iv) bevorzugt man die Verfahrensvariante (A), man kann aber auch dabei vorteilhaft gemäß Variante (B) arbeiten.

10

15

20

25

Darüber hinaus können die genannten Aminosilan- bzw. Aminosiloxansysteme in "trockener", d. h. geträgerter Form erfindungsgemäß eingesetzt werden. Dazu verfährt man geeigneterweise nach Variante (A) des erfindungsgemäßen Verfahrens. Man kann aber auch den einzusetzenden Füllstoff zunächst mit einem "trockenen" Aminosilan- bzw. Aminosiloxansystem physikalisch mischen und dann im Sinne der Verfahrensvariante (B) verfahren. Solche "trockenen" Silansysteme sind in der Regel durch Mischen von einem geeigneten Verhältnis der üblicherweise flüssigen Aminosilane bzw. Aminosiloxane mit einem geeigneten, d. h. porösen, saugfähigen, pulverförmigen, festen Trägermaterial, beispielsweise pyrogene oder gefällte Kieselsäure, Ruß, Wachs oder geschäumte Polyolefine, zugänglich.

Im Allgemeinen kann man einen hochgefüllten Polyolefin-Compound durch Vermischen der Polymerkomponenten und des jeweiligen Füllstoffs in einem Dazu wird in der Regel über zwei Compoundierkneter herstellen. Dosiervorrichtungen einerseits Polymer-Granulat und andererseits der Füllstoff so in den auf eine Temperatur oberhalb der Schmelztemperatur des Polymers aufgeheizten Mischer gegeben, dass der gewünschte Füllgrad eingehalten werden kann. Anschließend kann man gemäß Verfahrensvariante (A) die aminofunktionelle Siliciumverbindung in die Masse einarbeiten. Man kann aber auch einen mit einer aminofunktionellen Siliciumverbindung beschichteten Füllstoff erfindungsgemäß verwenden, vgl. Verfahrensvariante (B). Darüber hinaus kann man der Compoundmischung an sich bekannte Verarbeitungshilfsmittel sowie Stabilisatoren beimischen. Im Allgemeinen bedeutet Füllgrad das Massenverhältnis zwischen Füllstoff und Comound, z. B. bei 50 Gewichtsteilen Polymer und 50 Gewichtsteilen Füllstoff im Compound ist der Füllgrad 50 %. In der Regel wird der aus dem Mischer kommende Compound anschließend in an sich bekannter Weise granuliert und kann z. B. mit einer Spritzgießmaschine zu Halb- oder Fertigfabrikaten, d. h. Formteilen verarbeitet werden.

Gebrauchsfertige, z. B. durch Extrusion oder Spritzgießen hergestellte Artikel sind beispielsweise verschiedenartigste Gehäuse für elektronische Geräte oder Teile für Kraftfahrzeuge, z. B. Kabel, Radkappen und Ventilatorgehäuse, um nur einige zu nennen.

Die in erfindungsgemäßer Weise erhältlichen hochgefüllten Polyolefin-Compounds zeichnen sich in der Regel sowohl durch eine gute Festigkeit als auch durch eine gute Schlagzähigkeit aus.

- 5 Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind somit auch hochgefüllte Polyolefin-Compounds, insbesondere PP- und PE-Compounds, die nach dem erfindungsgemäßen Verfahren erhältlich sind.
- Weiterhin ist Gegenstand der Erfindung die Verwendung mindestens einer aminofunktionellen Siliciumverbindung für die erfindungsgemäße Herstellung hochgefüllter Polyolefin-Compounds, insbesondere für PP- und PE-Compounds.

Ebenso ist Gegenstand der Erfindung die Verwendung erfindungsgemäßer Compounds für die Erzeugung von Polyolefin-Formteilen.

So verwendet man erfindungsgemäße Compounds besonders vorteilhaft für die Herstellung von flammwidrigen Kabelcompounds, die insbesondere beim Automobilbau eingesetzt werden können.

20 Somit sind auch Gegenstand der vorliegenden Erfindung Artikel, deren Herstellung auf dem Einsatz erfindungsgemäßer Compounds basiert.

Die vorliegende Erfindung wird durch die nachfolgenden Beispiele näher erläutert ohne der Gegenstand der Erfindung zu beschränken.

Beispiele:

15

25

30

Vergleichsbeispiel

Folgende Richtrezeptur wird geprüft:

- 97 Teile PP (HiFax CA 10A, BASELL)
 - 3 Teile mit Maleinsäureanhydrid modifiziertes PP (Exxetor PO 1020; ExxonMobil Chemicals)
 - 183 Teile Magnesiumhydroxid (Magnifin H7, Albemarte)

Herstellung:

In einem Extruder werden die Polymerkomponenten zusammen mit dem Füllstoff zum Compound verarbeitet und Prüfkörper daraus hergestellt, Ergebnisse vgl. Tabelle 1.

5

10

15

20

Beispiel 1

Folgende Richtrezeptur wird geprüft:

97 Teile PP (HiFax CA 10A, BASELL)

3 Teile maleinsäureanhydridmodifiziertes PP (Exxetor PO 1020; ExxonMobil Chemicals)

183 Teile Magnesiumhydroxid (Magnifin H7, Albemarte)

2 Teile N-n-Butyl-3-Aminopropyltrimethoxysilan (DYNASYLAN® 1189; Degussa)

Herstellung:

Der Füllstoff wird in einem Lödige-Mischer mit dem Aminosilan beschichtet. Das Beschichten des Füllstoffs mit dem Aminosilan erfolgt bei ca. 60 °C. Nach ca. 20 Minuten Mischzeit wird der Füllstoff bei 60 °C und 400 mbar Unterdruck getrocknet. Das Ergebnis ist ein weißes leichtfließendes Pulver. Danach werden in einem Doppelschneckenextruder die Polymerkomponenten zusammen mit dem aminosilanbeschichteten Füllstoff zum Compound verarbeitet. Aus einem Teil des Compounds werden auf einem Einschneckenextruder Bänder hergestellt. Aus diesen Bändern werden Probekörper für die Zugversuche und die Wasseraufnahme herausgestanzt. Die Fließeigenschaften werden von dem im Zweischneckenextruder hergestellten Compound bestimmt.

Tabelle 1:

An den gemäß Vergleichsbeispiel sowie Beispiel 1 hergestellten Prüfkörpern werden folgende Eigenschaften bestimmt:

Tests	Prüfkörper aus dem	Prüfkörper aus dem
	Vergleichsbeispiel	Beispiel 1
"Melt flow ratio" gemäß EN	5	25
ISO 1133		
[g/10 min]	,	
Zugfestigkeit gemäß EN	9,6	9,5
ISO 527		
[MPa]		
Bruchdehnung gemäß EN	36	322
ISO 527		
[%]		
Wasseraufnahme gemäß	0,4478	0,1278
EN 60811-1-3		
[mg/cm²]		

10

15

20

25

30

Patentansprüche:

- 1. Hochgefüllte Polyolefin-Compounds, bei deren Herstellung maleinsäureanhydridmodifiziertes Polyolefin und mindestens eine aminofunktionelle Siliciumverbindung eingesetzt werden.
- 2. Hochgefüllte Compounds nach Anspruch 1, deren Herstellung auf Einsatzstoffe aus der Reihe
 - (i) Polypropylen (PP) oder Polyethylen (PE),
 - (ii) maleinsäureanhydridmodifiziertes Polypropylen oder maleinsäureanhydridmodifiziertes Polypropylen,
 - (iii) Füllstoff,
 - (iv) mindestens einem Aminosilan und/oder Aminosiloxan und
 - (v) gegebenenfalls Stabilisatoren sowie Prozesshilfsmittel basiert.
- Hochgefüllte Compounds nach Anspruch 1 oder 2, gekennzeichnet durch einen Anteil von 0,1 bis 10 Gewichtsteilen der Komponente (ii) am Gesamtpolymeranteil.
- Hochgefüllte Compounds nach einem der Ansprüche 1 bis 3, gekennzeichnet durch Metallpulver, Metalloxide, Metallhydroxide und/oder Biostoffe als Füllstoffe.
- Hochgefüllte Compounds nach Anspruch 4, gekennzeichnet durch Magnesiumhydroxid, Siliciumdioxid, Silikate, Organoclays, Aluminiumhydroxid, Antimonoxid, Calciumcarbonat, Holz, Naturfasern, bioabbaubare Füllstoffe.
- Hochgefüllte Compounds nach einem der Ansprüche 1 bis 5, gekennzeichnet durch einen Gehalt an Füllstoff von 30 bis 85 Gew.-%, bezogen auf den Compound.

 Hochgefüllte Compounds nach einem der Ansprüche 1 bis 6, gekennzeichnet durch einen Gehalt an Komponente (iv) 0,01 bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Compound.

5

 Hochgefüllte Compounds nach einem der Ansprüche 1 bis 7, gekennzeichnet durch mindestens eine aminofunktionelle Siliciumverbindung aus der Reihe

10

a) Aminosilan der allgemeinen Formel I

$$R^1$$
-Si(CH₃)_x(Z)_{3-x} (I),

15

worin die Gruppen Z gleich oder verschieden sind und Z eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 C-Atomen bedeutet, x gleich 0 oder 1 ist und R¹ eine Aminogruppe der Formel H₂N-[(CH₂)₂NH]_y-(CH₂)₃- mit y gleich 0 oder 1 oder 2 darstellt,

b) Aminosilan der allgemeinen Formel II

20

$$R^2{}_{(2\text{-v})}NH_v\text{-}(CH_2)_3\text{-Si}(CH_3)_x\!(Z)_{3\text{-x}} \hspace{1cm} (II),$$

25

worin die Gruppen Z gleich oder verschieden sind und Z eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 C-Atomen bedeutet, x und v unabhängig gleich 0 oder 1sind, Gruppen R² gleich oder verschieden sind und R² eine lineare, cyclische oder verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 20 C-Atomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 12 C-Atomen darstellt,

c) Bis-Aminosilan der allgemeinen Formel (III)

30

$$(Z)_3Si(CH_2)_3[NH(CH_2)_2]_wNH[(CH_2)_2NH]_z(CH_2)_3Si(Z)_3$$
 (III),

10

15

25

worin die Gruppen Z gleich oder verschieden sind und Z eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 C-Atomen darstellt, w und z unabhängig von einander gleich 0, 1 oder 2 sind,

d) Aminosiloxan-Oligomere der allgemeinen Formeln (IV) und (V),

in denen die Substituenten R aus

- aminopropylfunktionellen Gruppen der Formel -(CH₂)₃-NH₂ oder -(CH₂)₃-NHR' oder -(CH₂)₃-NH(CH₂)₂-NH₂ oder -(CH₂)₃-NH(CH₂)₂-NH(CH₂)₂-NH₂, worin R' eine lineare, verzweigte oder cyclische Alkylgruppe mit 1 bis 18 C-Atomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 12 C-Atomen ist, und
- Methoxy-, Ethoxy- und/oder Propoxygruppen und
- gegebenenfalls Alkyl-, Alkenyl-, Isoalkyl-, Cycloalkylgruppen mit 1 bis 18 C-Atomen und/oder Arylgruppen mit 6 bis 12 C-Atomen bestehen, wobei an ein Silicium-Atom höchstens eine aminopropylfunktionelle Gruppe gebunden ist und der Oligomerisierungsgrad für Verbindungen der allgemeinen Formel IV im Bereich von 2 ≤ m ≤ 30 und der für Verbindungen der allgemeinen Formel V von 3 ≤ n ≤ 16 ist,
- e) einer Mischung aus mindestens zwei der zuvor genannten aminofunktionellen Siliciumverbindungen,

oder

f) einer Mischung mindestens einer aminofunktionellen Siliciumverbindung und mindestens einem Vinylsilan und/oder Alkylsilan.

Verfahren zur Herstellung eines Compounds nach einem der Ansprüche 1 bis
 8,

dadurch gekennzeichnet,

dass man

(A) die Komponenten (i), (ii), (iv) und gegebenenfalls (v) in einem beheizten Mischaggregat mit Extrusionsvorrichtung zusammenbringt, mischt, die flüssige Masse extrudiert und Granulat gewinnt

oder

5

10

15

25

(B) in einem Rührkessel zunächst die Komponente (iii) mit Komponente (iv) beschichtet oder mischt,

ferner die Komponenten (i) und (ii) sowie gegebenenfalls (v) in einem beheizten Mischaggregat mit Extrusionsvorrichtung zusammenbringt, mischt und danach das im Reaktor erzeugte Gemisch der Komponenten (iii) und (iv) dem Polymergemisch zusetzt und einarbeitet, die flüssige Masse extrudiert und das Granulat gewinnt.

- 10. Compounds erhältlich nach Anspruch 9.
- 11. Verwendung mindestens einer aminofunktionellen Siliciumverbindung nach
 20 einem der Ansprüche 1 bis 10 für die Herstellung hochgefüllter Polyolefin-Compounds.
 - 12. Verwendung von hochgefüllten Compounds nach einem der Ansprüche 1 bis 8 oder eines nach Anspruch 9 oder 10 erhaltenen Compounds für die Erzeugung von Polyolefin-Formteilen.
 - 13. Verwendung eines Compounds nach einem der Ansprüche 1 bis 12 für die Herstellung von flammwidrigen Kabelcompounds.
- 30 14. Artikel, dessen Herstellung auf einem Compound nach einem der Ansprüche 1 bis 13 basiert.

Zusammenfassung:

Hochgefüllte Polyolefin-Compounds

Die vorliegende Erfindung betrifft hochgefüllte Polyolefin-Compounds, bei deren Herstellung maleinsäureanhydridmodifiziertes Polyolefin und mindestens eine aminofunktionelle Siliciumverbindung eingesetzt werden, ein Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung.